

## 용융결정화 공정을 이용한 1, 2족 핵종 분리

변상근\*, 조용준, 이한수, 김인태

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

byunsk@kaeri.re.kr

### 1. 서론

사용후 산화물 핵연료의 전해환원(electrolytic reduction) 공정은 사용 후 핵연료를 고온용융 LiCl계에서 Li<sub>2</sub>O를 이용하여 산화물 핵연료를 금속으로 전환시킨다. 이때 U, TRU 및 희토류핵종들은 거의 대부분의 산화물로 전환되지만 1족 및 2족 핵종들은 염화물형태로 LiCl염내에 존재하게 된다. 따라서 전해환원 공정이 진행됨에 따라서 LiCl 염내에는 고방열성 핵종인 Cs 및 Sr이 축적되게 되며 이로 인한 발열로 인해 더 이상 LiCl의 사용이 불가능해지므로 지속적인 전해환원 공정의 운전을 위해서는 새로운 LiCl염으로 교체를 해야 하고 따라서 고방열성 핵종을 포함하고 있는 LiCl염이 폐기물로 발생하게 된다. LiCl 염 폐기물은 고방열성 핵종들을 포함하고 있기 때문에 모두 안전한 형태로 고화처리 되어야 하므로 이로 인한 최종 처분대상 폐기물의 양이 크게 증가하게 된다. 따라서 LiCl 염 폐기물 내 포함되어 있는 1/2족 고방열성 핵종(Cs, Sr등)을 분리한 후 분리된 고방열성 핵종만을 고화처리하고 나머지 정제된 LiCl염은 전해환원 공정에 재사용하는 방법을 사용한다면 기존의 단순한 “throw-away” 방법에 비하여 최종 처분에 대한 폐기물의 양을 획기적으로 줄일 수 있다. 따라서 본 연구에서는 용융결정화 방법을 이용하여 LiCl 염 폐기물 내 포함되어 있는 Cs 및 Sr을 소량의 LiCl에 농축시켜 분리하는 LiCl 염폐기물 정제에 대한 연구를 수행하였다.

### 2. 실험 및 결과

본 연구에서는 여러 가지의 용융결정화 공정 중 zone freezing 과 경막결정화(layer crystallization) 공정을 사용하여 LiCl 염 폐기물 정제에 대한 연구를 수행하였다. Fig.1에 실험에 사용된 zone freezing 및 layer crystallization 장치에 대한 개략도를 나타내었다. 그림에서 볼 수 있듯이 zone freezing 장치는 크게 가열부, 냉각부, 단열부 및 용기상승장치로 이루어져 있으며 경막결정화 장치는 가열부, 도가니, 결정화기 그리고 냉각공기 주입장치로 구성되었다. 본 결정화 실험에서 주요 실험변수로는 초기 용융염의 온도와 냉각속도(zone freezing의 경우는 냉각부로의 용기상승속도, 경막결정화의 경우는 냉각공기 유량)이었으며 이러한 실험변수에 따른 Cs 및 Sr의 농축특성에 대한 실험을 수행하였다.

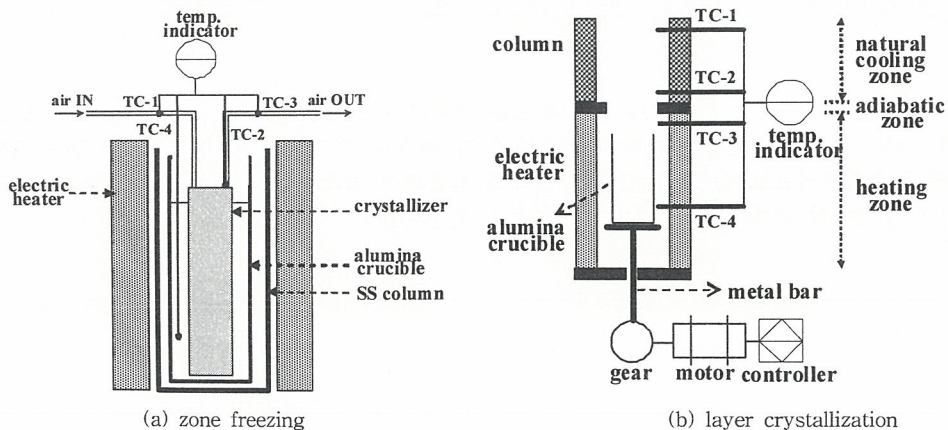


Fig. 1. Schematic diagram of experimental apparatus

### 2.1. Zone freezing에 의한 LiCl 염 폐기물 정제

Zone freezing로 생성된 결정 내에 존재하는 분순물들의 농도분포는 분리계수(k)로 나타내며 분리계수를 통해서 일정 LiCl염 재생율에서 Cs 및 Sr의 분리효율을 예측할 수 있다. Fig.2는 zone freezing을 통하여 생성된 결정 내 Cs 및 Sr의 농도분포 및 이때의 k값을 나타내었다. 분리계수는 직경이 44mm인 알루미늄 도가니의 상승속도가 증가함에 따라서 증가하였으며(즉, Cs/Sr의 분리효율을 감소하였고) 최소의 k값은 660°C의 초기용융염 온도, 1.7 mm/hr의 도가니 상승속도에서 얻을 수 있었으며 이때의 k값은 Cs 및 Sr에 대하여 각각 0.010, 0.012 이었다. Fig. 3에 염 재생율 및 k값에 따른 핵종분리효율을 나타내었는데 k값이 약 0.010인 경우, 염 재생율을 90%로 하였을 경우 약 90%의 핵종분리 효율을 나타내었다.

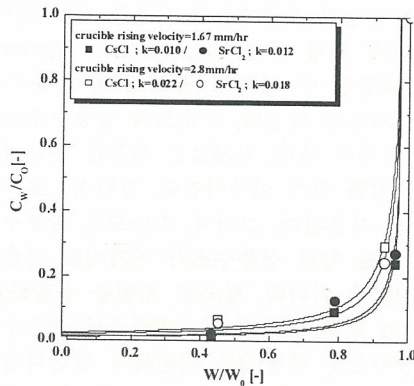


Fig. 2. Impurity distribution with axial weight fraction of crystal

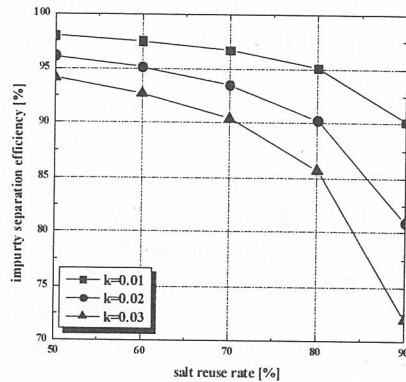


Fig. 3. Impurity separation efficiency with k and salt reuse rate

### 2.2. 경막결정화에 의한 LiCl 염 폐기물 정제

실험변수(초기 용융염온도, 냉각공기유량)에 따른 결정화실험을 수행하여 얻어진 결정 내 포함되어 있는 Cs 및 Sr의 농도를 측정하며 각 실험에서 얻어진 Cs 및 Sr의 분리효율 결과를 Fig. 4에 나타내었다. 그림에서 볼 수 있듯이 90%의 염 재생율을 고려할 경우 90%이상의 핵종분리 효율을 얻을 수 있었다. 경막결정화 공정에서 결정성장속도는 핵종 분리효율에 큰 영향을 미치는데 Fig. 5에서 볼 수 있듯이 90% 이상의 핵종분리 효율을 얻기 위해서는 5 g/min 미만의 결정성장속도가 유지되어야 한다. 본 경막결정화를 이용한 LiCl 정제공정에 대한 실험에서 얻어진 최적 운전조건은 700-710°C의 초기용융염온도, 25-30 l/min 냉각공기유량 및 5 g/min 미만의 결정성장속도였다.

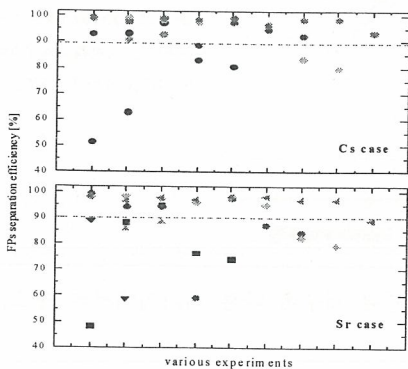


Fig. 4. Impurity separation efficiency by layer crystallization process

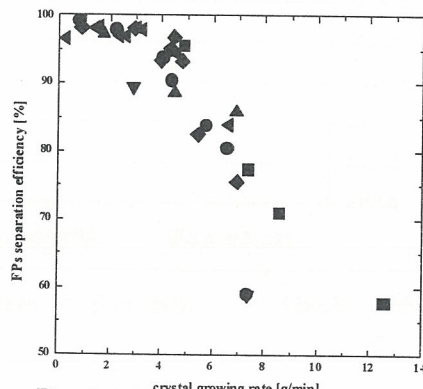


Fig. 5. Effect of crystal growing rate on impurity separation efficiency